(1) Publication number:

0 135 191 **B**1

(12)

EUROPEAN PATENT SPECIFICATION

(4) Date of publication of patent specification: 26.10.88

② Application number: 84110916.8

② Date of filing: 12.09.84

(3) Int. Cl.4: C 07 C 49/813, C 07 C 49/84, C 07 C 79/36, C 07 C 69/757, A 01 N 35/06, A 01 N 37/42, C 07 C 143/78, C 07 C 147/06, C 07 C 147/10

- (Recognitional Control of the Contro
- (3) Priority: 17.08.84 US 640791 27.12.83 US 566077 16.09.83 US 532882
- Date of publication of application: 27.03.85 Bulletin 85/13
- (4) Publication of the grant of the patent: 26.10.88 Bulletin 88/43
- M Designated Contracting States: AT BE CH DE FR GB IT LI NL SE
- (S) References cited: EP-A-0 007 243 EP-A-0 017 195 EP-A-0 090 262

CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 85, 1976, p. 423, no. 5280f, Columbus, Ohio (US) SYNTHESIS, December 1978, pages 925-926, Georg Thieme Publishers; A.A. AKHREM et al.: "A new simple synthesis of 2-acylcyclohexane-1,3-diones"

The file contains technical information submitted after the application was filed and

- (7) Proprietor: STAUFFER CHEMICAL COMPANY Westport Connecticut 06881 (US)
- (7) Inventor: Michaely, William James 3161 Birmingham Drive Richmond, Ca. 94806 (US) Inventor: Kraatz, Gary Wayne 1423 Bing Drive San José, CA 94806 (US)
- (A) Representative: Kraus, Walter, Dr. et al Patentanwälte Kraus, Weisert & Partner Thomas-Wimmer-Ring 15 D-8000 München 22 (DE)

Note: Within nine months from the publication of the mention of the grant of the European patent, any person may give notice to the European Patent Office of opposition to the European patent granted. Notice of opposition shall be filed in a written reasoned statement. It shall not be deemed to have been filed until the opposition fee has been paid. (Art. 99(1) European patent convention).

10

20

25

30

35

40

45

55

60

This invention relates to 2-{2-substituted benzoyl}-1,3-cyclohexanediones, a method of controlling Description undesirable vegetation and a herbicidal composition comprising a 2-(2-substituted benzoyl)-1,3-cyclohexandione.

Compounds having the structural formula

wherein X can be an alkyl, n can be 0, 1 or 2, and R_1 can be phenyl or substituted phenyl are described in Japanese patent application 84632—1974 as being intermediates for the preparation of herbicidal compounds of the formula

wherein R_1 , X, and n are as defined above and R_2 is alkyl, alkenyl, or alkynyl. Specifically taught herbicidal compounds of this latter group are those where n is 2, X is 5,5-dimethyl, R₂ is allyl and R₁ is phenyl, 4-

The precursor intermediates for these three specifically taught compounds have no or almost no chlorophenyl or 4-methoxyphenyl.

In contrast, the compounds of this invention have exceptional herbicidal activity. Applicant's compounds must have a chlorine, bromine, iodine or alkoxy substitution in the 2-position of the phenyl moiety of their compounds to obtain the exceptional herbicidal activity. Chlorine is the preferred substituent. The exact reason why such a substitution imparts exceptional herbicidal activity to the

EP—A3—90 262 which was published on October 5, 1983 is prior art in re novelty for the compounds of compound is not fully understood. this invention. It is no prior art for the compounds in re inventive step which were described in U.S. patent application 532 882 of September 16, 1983, the first priority date of this application.

The compounds described and claimed in this application are not described in the above-mentioned

This invention relates to certain novel 2-(2-substituted benzoyl)-cyclohexane-1,3-diones as herbicides. European patent application. The compounds of this invention have the following structural formula

Ι

50 wherein

R is C_1-C_6 alkyl; R¹ is hydrogen, C₁—C₆ alkyl, or

wherein R^a is C_1 — C_4 alkyl or R and R^1 together are alkylene having 3 to 6 carbon atoms;

R² is chlorine, bromine, iodine, or C₁—C₄ alkoxy;

R³ and R⁴ independently are

- (1) hydrogen;
- (2) halogen;
- (3) C1-C4 alkyl;
- (4) C₁—C₄ aliphatic alkoxy;

(5) nitro;

5

(6) C₁—C₄ haloalkyl; and (7) R^bSO_n — wherein R^b is C_1 — C_4 alkyl; and n is the integer 0, 1 or 2;

Rs is hydrogen or C1-C6 alkyl; and

 R^6 is hydrogen or C_1 — C_6 alkyl; and

 R^7 is hydrogen or C_1 — C_6 alkyl; and

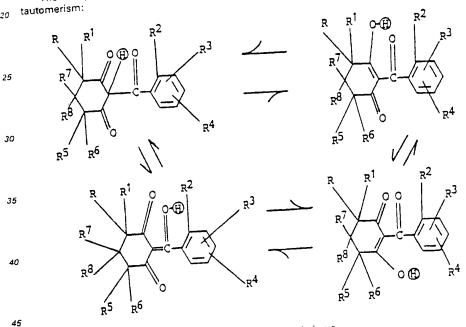
R^a is hydrogen or C₁—C₆ alkyl;

In the above formula R is preferably C₁—C₄ alkyl, more preferably methyl. R¹ is preferably methoxy, most more preferably methyl, most preferably R¹ is hydrogen or methyl. R² is preferably methoxy, most more presentably methyr, most presentably in its invuringent of methyr, in its presentably methoxy, most preferably R² is chlorine, bromine or methoxy, R³ and R⁴ are preferably hydrogen, fluorine, chlorine or preferably R² is chlorine, bromine or methoxy. bromine, methyl, methoxy, trifluoromethyl. If R³ is R⁸SO_n—, R⁶ is preferably methyl, and n is preferably 2.

 R^5 , R^6 , R^7 and R^8 are independently the same or different and are selected from the group consisting of hydrogen, C_1 — C_6 alkyl, preferably C_1 — C_4 alkyl, more preferably methyl, most preferably hydrogen or

More preferably, R³ is chlorine, hydrogen, methyl, alkylthio or methoxy. Preferably R⁴ is hydrogen, chlorine, nitro, CF_3 , or R^bSO_n wherein R^b is C_1 — C_4 alkyl, preferably methyl and n is the integer 0, 1 or 2, methyl, and their salts.

The compounds of this invention can have the following four structural formulae because of preferably 2.



wherein R, R¹, R², R³, R⁴, R⁵, R⁶, R⁷ and R⁸ are as defined above.

The circled proton on each of the four tautomers is reasonably labile. These protons are acidic and can be removed by any base to give a salt having an anion of the following four resonance forms:

65

60

50



25

30

35

40

45

65

wherein R, R1, R2, R3, R4, R5, R6, R7 and R8 are as defined above. Examples of cations of these bases are inorganic cations such as alkali metals e.g. lithium, sodium, and potassium, alkaline earth metals, e.g. barium, magnesium, calcium and strontium, or organic cations such as substituted ammonium, sulfonium or phosphonium wherein the substituent is an aliphatic or aromatic

The term "aliphatic group" is used herein in a broad sense to cover a large class of organic groups characterized by being derived from (1) an acylic (open-chain structure) of the paraffin, olefin and acetylene hydrocarbon series and their derivatives or (2) alicyclic compounds. The aliphatic group can have from 1 to

The term "aromatic group" is used herein in a broad sense to distinguish from the aliphatic group and includes a group derived from (1) compounds having 6 to 20 carbon atoms and characterized by the presence of at least one benzene ring, including monocyclic, bicyclic and polycyclic hydrocarbons and their derivatives and (2) heterocyclic compounds having 5 to 19 carbon atoms which are similar in structure and are characterized by having an unsaturated ring structure containing at least one atom other than carbon, such as nitrogen, sulfur and oxygen and derivatives of these heterocyclic compounds.

In the above description of the compounds of this invention alkyl and alkoxy include both straight and branched configurations; for example, methyl, ethyl, n-propyl, isopropyl, n-butyl, sec-butyl, isobutyl, and

The compounds of this invention and their salts are active herbicides of a general type. That is, they are herbicidally effective against a wide range of plant species. The method of controlling undesirable vegetation of the present invention comprises applying an herbicidally effective amount of the abovedescribed compounds to the area where control is desired.

The compounds of the present invention can be prepared by the following general method.

The compounds of the present
$$R^{2}$$
 R^{3} R^{7} R^{1} R^{2} R^{2} R^{3} R^{2} R^{3} R^{2} R^{3} R^{2} R^{3} R^{2} R^{3} R^{4} R^{5} R^{6} R^{6} R^{7} R^{8} R^{8} R^{9} R^{9}

Generally, mole amounts of the dione and substituted benzoyl cyanide are used, along with a slight mole excess of zinc chloride. The two reactants and the zinc chloride are combined in a solvent such as

methylene chloride. A slight mole excess of triethylamine is slowly added to the reaction mixture with cooling. The mixture is stirred at room temperature for 5 hours.

The reaction product is worked up by conventional techniques.

The above-described substituted benzoyl cyanide can be prepared according to the teaching of T. S. Oakwood and C. A. Weisgerber, Organic Synthesis Collected, Vol. III, pp. 122 (1955).

The following example teaches the synthesis of a representative compound of this invention.

Example I

4,4-Dimethyl-2-(2,4-dichlorobenzyl)-cyclohexane-1,3-dione

10

15

30

35

40

45

50

55

60

65

4,4-Dimethyl-1,3-cyclohexanedione [14.0 grams (g), 0.1 mole], 20.0 g (0.1 mole) 2,4-dichlorobenzoyi cyanide and 13.6 g (0.11 mole) anhydrous, powdered zinc chloride were combined in 100 milliliters (ml) methylene chloride. Triethylamine (10.1 g, 0.12 mole) was slowly added with cooling. The reaction mixture was stirred at room temperature for 5 hours and then poured into 2N hydrochloric acid. The aqueous phase was surred at room temperature for 5 hours and their poured into 21 hydrodinone acid. The aqueous was discarded and the organic phase was washed with 150 ml 5% Na_2CO_3 four times. The aqueous was discarded and the organic phase was washed with 150 lin 5/6 (142,003 four times. The aqueous washings were combined and acidified with HCl, extracted with methylene chloride, dried and concentrated to yield 25.3 g of crude product. The crude product was chromatographed (2% AcOH/CH₂Cl₂) in 5 g aliquots then reduced on rotavap under a separator pressure at 50°C for 30 minutes to remove AcOH. This yielded an oil (40% yield). The structure was confirmed by instrumental analysis.

The following is a table of certain selected compounds that are preparable according to the procedure described hereto. Compound numbers are assigned to each compound and are used throughout the remainder of the application.

Compound	R	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	<u>R</u> 5	<u>R</u> 6	<u>R⁷</u>	R8
1	C ₂ H ₅ -O-C-	Ħ	a	Ħ	4-C1	Ħ	Ħ	Ħ	В
2 3 4	C ₂ H ₅ -O-C-	CH3 hanolamo hanolamo	Cl onium onium	H salt of salt of	4-Cl Compound Compound	Н Ю. Ю.	H 2 7	Ħ	Ħ
5 6	0 C ₂ E ₅ -O-C- triet	CH3	Cl onium	3-Cl salt of	4-Cl Compound	H No.	표 5	Ħ	B
7	CH ₃	CH ₃ CH ₃ n-C ₃ H ₇	ម ១ ១ ១	н н	4-Cl 4-Cl 4-Cl	H	8 3 H 8	н н н	田 田 田
9 10 11	CH ₃ CH ₃	n-C ₃ H ₇ n-C ₄ H ₉	ជ ជ	Н Н	4-Cl 4-Cl	Ħ	3 E B 13 E	H H	н н
12 13	CH ₃	n-C ₄ H ₉ H	ជ ជ ជ	e e e	4-Cl 4-Cl 4-Cl	Ħ	13 E H H EI	H	н Н
14 15 16	СН ₃ С ₂ Н ₅ С ₂ Н ₅	н н	а С	н н	4-Cl 4-Cl	E C H	н в _Е в	Ħ	Н Н Н
17 18	n-C4H9	н н	០០០	н н н	4-Cl 4-Cl 4-Cl		я3 в	. B	<u>н</u>
19 20 21	i-C ₃ ā7 i-C ₃ ā7 	и н С ₅ н ₁₀ —	а С	н н	4-Cl 4-Cl 4-Cl	E	H3 H I F H3 H	I F	н
22 23	СH ₃	CH ₃	а С	я 3-С1				-	H H

TABLE I (continued)

			,							
Compound	R	_R ¹	_R 2	R3	R4	_R 5	<u>R</u> 6	<u>R</u> 7	<u>R</u> 8	-
1 Caraco			1	3-C1	4-C1	CH3	Ħ	Ħ	Ħ	
24	CH ₃	3	a a	3-C1		H	H	Ħ	Ħ	
25	CH3	3-1	a a	3-Cl		CH3	Ħ	Ħ	Ħ	
26	CH ₃	53-7		3-C1	4-Cl	н	Ħ	H	Ħ	
27	CH ₃	43	CI CI	3-C1	4-Cl	CH ₃	Ħ	H	Ħ	
28	CH3		el e	3-C1	4-Cl	В	Ħ	Ħ	H	
29	CH ₃	14	a a	3-C1	4-Cl	CH ₃	Ħ	Ħ	Ħ	
30	CE3	H	a a		4-Cl	8	Ħ	В	Ħ	
31	C285	B	a	3-C1	4-Cl	_ CH ₃	H	Ħ	B	ſ
32	C ₂ H ₅	Ħ	a	3-C1	4-Cl	Ħ	, H	Ħ	E	I
33	n-C4H9	Ħ	a	3-C1	4-Cl	CH;		H	F	I
34	n-C4E9	Ħ	a	3-C1	4-Cl	H.	H	Н	F	.
35	i-C ₃ H ₇	Ħ	a	3-01	4-Cl		3 E	B	1	Ħ
36	i-C3H7	Ħ	a	3-C1	4-Cl	<u>H</u>	3 – H	Ħ	. 1	Ħ
37	 c	5 ^H 10	a	3-C1	4-C1		- B E	В		E
38	-0	5 ^H 10	a	3-C1		H	 E	В		Ħ
39	CH3	CH_3	D	Ħ	4-CH3502		- I ₃ H	Е	1	H
40	CH3	CH3	a	H	4-CH ₃ SO ₂		.3 E		3	Ħ
41	CH ₃	n-C3 [⊞] 7	a	Ħ	4-CH3SO2		н Н ₃ Н		Ħ	Ħ
42	CH ₃	n-C3H7		Ħ	4-CH ₃ SO ₂		-3 B		Ħ	Ħ
43	CB3	n-C4E9	d	Ħ	4-CH3SO2		H ₃ B	•	- H	Ħ
44	CH ₃	n-C4H9		H	4-CH ₃ SO ₂	•	_	•	Ε	Ħ
45	CH3	Ħ	D	В	4-CH ₃ SO ₂		- H3 E	_	8	Ħ
46	CH ₃	Ħ	a	H	4-CH ₃ SO ₂	-	-	- Fl	H	Ħ
47	C ₂ H ₅	Ħ	D	Ħ	4-CH ₃ SO	4	H3 1		H	Ħ
48	C ₂ H ₅	Я	a	Ħ	4-CH ₃ SO	_		H	H	R
49	n-C4H9	Ħ	CI	H	4-CH ₃ SO		33		Ħ	Ħ
50	n-C4E9	Ħ	a	H	4-CH3SO	_	3 3	Ξ.	<u>н</u>	Ξ
51	i-C3H7	Я	a	H	4-CH3SC				H	H
52	i-C3H7	日	a	H	4-CE3SC	-	CH3	n Ħ	H	H.
53	-	-C5H10-	Cl		4-CH ₃ SC		H Cu-	n H	H	Ħ
54	-	-C5H10-	Cl		4-CH ₃ SC	-	CH3	н	H	H
55	CH3	CH3	CI	. 3-€	1 4-CH3S	^J 2	Ħ	14		••

TABLE I (continued)

			(
Compound Number	R	R ¹	R ²	<u> </u>	R ⁴	<u>R</u> 5	<u>R</u> 6	<u>R⁷</u>	<u>R</u> 8
	CH ₃	CH ₃	a	3-C1	4-CH3SO2	CH ₃	Я	Ħ	Ħ
56	-	_	a	3-C1	4-CH3SO2	Ħ	H	H	H
57	CH ₃	n-C3H7	cı Cı	3-C1	4-CH3SO2	CH ₃	H	Ħ	H
58	CH3	n-C4H9	cı	3-C1	4-CH3SO2	Ħ	Ħ	Ħ	H
59	CE3		a a	3-C1	4-CE3SO2	CH ₃	H	Ħ	Ħ
60	CH ₃	n-C4 ^E 9	a	3-C1	4-CH3502	Ħ	H	H	Ħ
61	CH3	Ħ	d	3-C1	4-CH ₃ SO ₂	CH ₂	н	Ħ	Ħ
62	CH ₃	H	a	3-C1	4-CH3SO2	В	В	H	H
63	C ₂ H ₅	Ħ		3-C1	4-CH ₃ SO ₂	CH:	н	Ħ	H
64	C285	H	CI .	3-C1	4-CH ₃ SO ₂		H	Ħ	H
65	n-C4H9	Ħ	a a		4-CE ₃ SO ₂		3 H	Ħ	E
66	n-C4E9	Ħ	a	3-Cl	4-CH ₃ SO ₂		H	E	Ħ
67	i-C ₃ H7	Ħ	c1	3-C1	4-CH ₃ SO ₂	•	3 H	Ħ	Ħ
68	i-C3H7	Ħ	CI.	3-C1		•	H	Ħ	Ħ
69		5 ^H 10	Cl	3-Cl	4-CH ₃ SO ₂			H	Ħ
70	-0	5 ^H 10	a	3-C1	4-CH ₃ SO	-	 H	H	H
71	CH3	CH3	Cl	3-Cl	4-C ₂ E ₅ SC			<u> </u>	Ħ
72	CH3	CH3	a	3-C1	4-C ₂ E ₅ S		 H	H	Ħ
73	CH3	n-C ₃ H ₇	Cl	3-CL	4-C ₂ H ₅ S			田田	H
74	CH ₃	n-C3H7	a	3-C1	4-C2E5S		13 E E	Ħ	Ħ
75	CH3	n-C4H9	CI	3-C1	4-C2H5S			H	-
76	CH ₃	n-C4H9	a	3-C1	4-C ₂ H ₅ S				
77	CH ₃	Ħ	a	3-C1	4-C2H5S		H		
78	CH ₃	Ħ	D	3-C1	4-C2855				
79	C285	Ħ	a	3-01	4-C2H55				
80	C ₂ H ₅	H	α	3-C1					•
81	n-C4H9	Ħ	cl	3-01				-	•
82	n-C4H9	Ħ	CI	3-C1					-
83	i-C3H7	Ħ	a	3-C1				-	
84	i-C ₃ H ₇	H	α	3-C1					H H
85	, , ,	-C5 ^H 10	α	3 - C1	4-C ₂ H ₅	502	Ħ	H !	H H
86	_	-C5H10	a	3-01	1 4-C ₂ H ₅	50 ₂	сн3		H H
87	сн3	CH ₃	a	Н	4-C2H5	50 ₂	Н	Ħ	н н

TABLE I (continued)

			(0011						
Compound Number	R	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	_R 5	<u>R</u> 6	R ⁷	<u>R</u> 8
(Kinda)				_	4-C2F15SO2	CHa	Ħ	Ħ	H
88	CH ₃	3	Cl	E	4-C ₂ R ₅ SO ₂		H	E	H
89	CH ₃	n-C3H7	Cl	H	4-C ₂ R ₅ SO ₂			Ħ	H
90	CH ₃	n-C3H7	a	Ħ			Ħ	Ħ	В
91	CH ₃	n-C ₄ H ₉	Cl	B	4-C ₂ H ₅ SO ₂ 4-C ₂ H ₅ SO ₂			Ħ	Ħ
92	CH3	n-C4H9	a	H	4-C ₂ H ₅ SO ₂		H	Ħ	Ħ
93	CH ₃	B	Cl	H	4-C2F1550;			Ħ	Ħ
94	CH3	Ħ	a	Ħ			5 E	H	H
95	C2 ^H 5	Ħ	cı	H	4-C ₂ H ₅ SO			Ξ.	Ħ
96	C2 ^H 5	. Н	a	H	4-C ₂ H ₅ SO		3 H	Ξ	Ħ
97	n-C4H9	Ħ	a	H	4-C ₂ H ₅ SO			Ξ	Ħ
98	n-C4E9	Ħ	a	H	4-C2H5SO		з н Н	H	H
99	i-C ₃ H ₇	Ħ	a	Ħ	4-C ₂ H ₅ SO 4-C ₂ H ₅ SO		-	H	Ħ
100	i-C3H7	B	a	B			Э	Ħ	H
101	_	5 ^H 10	a	Ħ	4-C ₂ H5SC 4-C ₂ H5SC			Ħ	Ħ
102	_	5 ^H 10	Cl	H			H	Ħ	Ħ
103	CH ₃	CH ₃	a	3-001	13 4-C2H5SC	72 L To CF		H	Ħ
104	CH3	CH ₃	a		H3 4-C2H5SC		-5 -E	Ħ	Ħ
105	CH3	n-C3H7	a		13 4-C2E5S 13 4-C2E5S			Ħ	Ħ
106	CH ₃	n-C3H7					- د- B	H	Ħ
107	CH ₃	n-C ₄ H ₉		3-00	H ₃ 4-C ₂ H ₅ S H ₃ 4-C ₂ H ₅ S	02 C		Ħ	H
108	CE3	n-C ₄ H ₉						В	H
109	CH ₃	Ħ	cī.		H ₃ 4-C ₂ H ₅ S H ₃ 4-C ₂ H ₅ S				Н
110	CH3	Ħ	a		нз 4-С2 ^н 5- нз 4-С2 ^н 5-				I H
111	C2H5	Ħ	a		H ₃ 4-C ₂ H ₅ S				H H
112	C2H5	H	CI.		H ₃ 4-C ₂ H ₅ S				н н
113	n-C4H9	Ħ	CI.	3-00	:H ₃ 4-C ₂ H ₅ :	302 (- 1H2 F	. I	я я
114	n-C4H9	Ħ	Cl		.n3 4-0255 :H3 4-0285				н н
115	i-C ₃ H ₇	Ħ	G.	3 ~ 0	CH ₃ 4-C ₂ H ₅	502 (505 (a 1	н н
116	i-C3H7	H	c1		CH ₃ 4-C ₂ H ₅				н н
117	-	-C5 ^Ħ 10	C1					u	н н
118	-	-C5H ₁₀	Cl		CH ₃ 4-C ₂ H ₅			n H	н н
119	CH3	CH ₃	a	3 - C	H ₃ 4-C ₂ H ₅	502	п	13	

TABLE I (continued)

		,	(conrr	I (nea)						
Compound	R	R ¹	_R 2	R ³	R ⁴	<u>R</u> 5	R6	R ⁷	R ⁸	
Number 120 121 122 123 124 125 126 127 128 129 130 131 132 133 134 135 136 137 138 139 140 141 142 143 144 145	CH3	R1 CH3		R3 3-CH3 3-C	4-C2H5SO CH3 4-CH3 CH3 4-CH3 CH3 4-CH3 CH3 4-CH3 CH3 4-CH3 CCH3 CCH3 4-CH3 CCH3 CCH3 4-CH3 CCH3 CCH3 4-CH3 CCH3 CCH3 CCH3 CCH3 CCH3 CCH3 CCH3	2 CH3 2 H 2 CH3 2	HHHHHHHHHHHHHHHHHH	ниннання нання на в в в в в в в в в в в в в в в в в в		l I
141	CH ₃	Ħ	a	3-0	CH3 4-CH	3502-	CH3	H H		-
143 144	C2#5	Ħ	CI	3-0 3-0	∝н ₃ 4-сн ∝н ₃ 4-сн	3502-	· СН3 • Н	Н	Ħ	Ħ
146 147	i-C ₃ H ₇ i-C ₃ H ₇	В	a a	3- . 3-	∞H ₃ 4-CE ∞H ₃ 4-CE	13203.	- B - CB	н 3 Н	H H	
148 149 150 151	CH3	—С5 ^H 10— СН3		. 3- . 3-	-осн ₃ 4-сі -осн ₃ 4-сі -сн ₃ 4-сі	83502 83502	- н - сн	н	н Н	н

TABLE I (continued)

			(COIL							
Compound Number	R	<u>R</u> 1	R ²	_R ³	R4	<u>R</u> 5	<u>R</u> 6	<u>R</u> 7	R8	_
(Manuel			-1	3-CH3	4-CH3SO2-	СНа	Ħ	H	Ħ	
1 52	CH ₃	3	n n	3-CH ₃	4-CH ₃ SO ₂ -		Ħ	Ħ	H	
153	CH ₃	3-1	 Cl	3-CE ₃	4-CH ₃ SO ₂ -		Ħ	Ħ	B	
154	CH3	3-/	a	3-CH ₃	4-CH ₃ SO ₂ -		Ħ	Ħ	Ħ	
155	CH ₃	. 4		3-CH ₃	4-CH3502-		Ħ	Ħ	Н	
156	CH ₃	4 9	ය ය	3-CH ₃	4-CH ₃ SO ₂ ·		Ħ	Н	Ħ	
157	CH ₃	_		3-CH ₃	4-CH ₃ SO ₂		Ħ	Ħ	Ħ	
158	CH ₃	-	a a	3-CH ₃	4-CH ₃ SO ₂		Ħ	Ħ	R	l
159	C ₂ H ₅	日	CI CI	3-CH ₃	4-CH ₃ SO ₂		E	H	P	Ī
160	C ₂ H ₅	Ħ	CI CI	3-CE3	4-CH ₃ SO ₂		Ħ	田	F	Ŧ
1 61	n-C4H9	Ħ	CI.	3-CH ₃	4-CH ₃ SO ₂		зΒ	Ħ	F	.
162	n-C4H9	H	Cl	3-CE3			Ħ	H	F	E
. 163	i-C3H7	Ħ	CI.	3-CH ₃	_		ą Ħ	B	,	Ħ
164	i-C3H7	Ħ	CI.	3-CE3			H	H		Ħ
165		5 ^H 10	a.	3-CH ₃			3 H	В	ſ	Ħ
166		5 ^H 10 [—]	Cl	3-CH ₃		H	H	H	1	B
167	CH3	CH3	CI.	_	,	Œ	13 E	E	i	Ħ
168	CH3	CH ₃	CI -	3-CH ₃)	B	E	E	Ξ.	Ħ
169	CH ₃	n-C3Ħ7	a a	3-CH			1 ₃ E	F	E	Ħ
170	CE3	n-C3H7	a -	3-CH	٠ .	Ħ	-J H	Ţ	Ħ	Ħ
171	CH3	n-C4H9	a	3-CE;	,		8 ₃ 8		Ħ	Ħ
172	CH ₃	n-C4H9		3-CH	3	日	-		Ħ	Ħ
173	CH ₃	H	cı	3-CH	2		нз н	i	Ħ	Ħ
174	CH ₃	H	Cl	3-CH		Ħ			Ħ	Ħ
175	C ₂ H ₅	H .	a	3-CH			: ∷H3 H		Ħ	Ħ
176	C ₂ H ₅	Ħ	a	3-CE	٠,				Ħ	Ħ
177	n-C4H9	Ħ	Cl	3-CF	- 3		343 E		Ħ	Ħ
178	n-C4H9	Ħ	Cl	3-CF	-		_	Ξ	Ħ	Ħ
179	i-C3H7	Ħ	CI	3 - Ci	٠- ١			- 9	H	Я
180	i-C3H7	H	Cl	3-C	· •		_	 H	Ħ	Н
181	-	-C5#10-	Cl	3-C	-		п СН3		я	Н
182	-	-С ₅ н ₁₀	Cl	3 - C	-		т н	H	H	Ħ
183	CH ₃	CH3	CI	3-0	CH ₃ 4-Cl		n	**	••	

0 135 191

TABLE I (continued)

Compound	R	<u>R</u> 1	R ²	R3	_R 4	<u>R⁵ R</u>	6 <u>F</u>	2 ⁷ F	8 _
		CH ₃	cı	3-∞H ₃	4-C1	СН3 В	E	E E	E
184	CH ₃	cn3 n–C3⊞7	a	-	4-Cl	H E	ī	f E	Ħ
185	CH3		a	•	4-C1	CH3 E	[]	E 1	H
186	CH ₃	n-C ₃ H ₇	ci Ci	3-00H ₃	4-C1	H F	1	Ħ 1	Ħ
187	CH3	n-C4E9	CI CI	3-00H ₃	4-Cl	CH ₃ E	i :	H !	Ħ
188	CH3	n-C4H9	d d	3-00H ₃	4-Cl	H	Ŧ	H	H
189	CH3	H	d d	3-0CH ₃	4-C1	CH ₃ 1	ł	H	H
190	CH ₃	H	a a	3-00H ₃	4-Cl	_		Ħ	Ħ
191	C2H5	H		3-00H3	4-C1	CH3	Ħ	Ħ	B
192	C2H5	Ħ	d d	•	4-Cl	_	H	Ħ	Ħ
193	n-C4H9	Ħ	a	3-00H ₃	4-Cl	CH ₃	Ħ	Ħ	Ħ
194	n-C4H9	Ħ	CI.	•	4-Cl	•	Ħ	Ħ	Ħ
195	i-C3H7	Ħ	G G	3-00H ₃ 3-00H ₃	4-Cl	CF13	Ħ	Ħ	Ħ
196	i-C3H7	E	a	•	4-Cl	H	Ħ	Ħ	Ħ
197		H ₁₀ —	CI .	3-0CH ₃	4-C1	CH ₃	Ħ	Ħ	Ħ
198	c ₅	# ₁₀ —	CI.	3-0CH ₃	4-C1	Ε.	Ħ	H	Ħ
199	CH3	C ₂ E ₅	ci -	Ħ	Ħ	H	Ħ	Ħ	Ħ
200	C⊞3	CH3	a	B	Br.	Ħ	Ħ	Ħ	Ħ
201	CH ₃	CH ₃	a	3-∞2 ⁸ 5	4 -8c	Ħ	Ħ	Ħ	Ħ
202	CH ₃	CH ₃	a	H	4-Cl	H 日	9	Ħ	Ħ
203	CH ₃	C285	a	3-C1	4-C1	Ħ	Ħ	Ħ	H
204	n-C3E7	Ħ	a	Ħ	4-01	_	_		
	0			_	4-Cl	Я	Ħ	Ħ	Ħ
205	c ₂ ਜ ₅ ∞-	n-C3g.		Ħ			Ħ	H	Ħ
206	CH3	CH3	a	H	4-i-C ₃ H ₇	502 II	Ħ	Ħ	Ħ
207	CH ₃	CH3	a	4-iC ₃ H ₇		H	H	н	Я
208	CH3	CH3	a	H	6-F	H	H	H	H
209	i-C387	Ħ	CI	3-CJ	4-Cl		H	E	Н.
210	CH3	CH3	a	3-∞ ₂ H ₅		H H	H	H H	н
211	i-C3H7000	(O) H	Cl	Ħ	4-Cl	н	Н	H	Ħ
212	C2H5∞(0		i ₇ Cl	Ħ	4-Cl		н	н	Ħ
213		C5 [∏] 10 ^{——}	Cl	H	4-C1	H	n H		н ₃ н
214	CH ₃	CH ₃	CI	H	4-C1	Ħ	п	Ų.	n

0 135 191

TABLE I (continued)

Compound		R ¹	R ²	_R 3	R ⁴	_R 5	_R 6	R ⁷	_R 8_
Number	R	R'	_ R_						
215	CH ₃	CH3	a	Ħ	4-n-C ₃ H ₇ SO ₂ -	H	Ħ		H
215	CH ₃	CH ₃		3-C1	4-n-C ₃ H ₇ SO ₂ -	Ħ	H	Ħ	H
216	CH ₃	CH ₃		3-CH ₃ O	н	H	Ħ	_	Ħ
217	CH ₃	CH ₃	CH30	H	4-Cl	H	H	H	Ħ
218		CH ₃	a	Ħ	4-Br	⊞3	Ħ	Ħ	Ħ
219	CH ₃	CH ₃	Br	Ħ	н	H	E	Ħ	H
220	CH ₃	CH ₃	ī	Ħ	日	E	H	Ħ	Ħ
221	CE3	CH ₃	F	Ħ	H	Ħ	Ħ	Ħ	Ħ
222	CH ₃	CH ₃	Сн ₃ 0	H .	Ħ	Ħ	Ħ	H	Ħ
223	CH ₃	-	C1.	3-allyloxy	4-Br	Ħ	Ħ	Ħ	Ħ
224	CH ₃	CH ₃	a	B	4-CH3SO2	Ħ	Ħ	CH3	Ħ
225	CH ₃	CH ₃	a	3-CH ₃ O	4-Br	CH3	Ħ	Ħ	Ħ
226	CH ₃	•	Br	H	3-CN	Ħ	Ħ	Ħ	Ħ
227	CH3	CH3	a	H	4N(CH3)SO2CF3	H	Ħ	Ħ	Ħ
228	CH3	CE3	a T	3-102	B	Ħ	Ħ	Ħ	日
229	CH3	CH ₃	C ₂ E ₅ C	_	4-Cl	B	Ħ	Ħ	Ħ
230	CH3	CH3	C1.	H	*	Ħ	Ħ	Ħ	Ħ
231	CH3	CH3	<u>а</u>	3-C ₂ E50	4-CH ₃ SO ₂	Ħ	Ħ	H	Ħ
232	CH ₃	CH3		3-CH ₃ O	4-C ₂ H ₅ SO ₂	Ħ	Ħ	Ħ	Ħ
233	CH ₃	CH ₃	ជ ជ	H H	4-n-C ₄ H ₉ SO ₂	Ħ	Ħ	Ħ	Ħ
234	CH3	CH3	a a	3-C1	4-n-C4E9SO2	CH	3 H	Ħ	Ħ
235	CH3	CH ₃	a a	3-C1	4-C ₂ H ₅ SO ₂	СН	3 H	H	Ħ
236	Œ3	CH ₃		3-C1	4-F	H	H	Ħ	Ħ
237	CH3	CH3	a		4-Br	Ħ	H	日	Ε.
238	CH3	Ħ	Cl.	3-CH ₃ O	H H	H	Н	H	н
239	CH3	CH3	CI.	3-CH ₃ O	n Pr:50 ₂	Н	Ħ	H	Н
240	CH3	CH3	ci Ci	EtS Dr.S	EtS	Н	H	Ħ	Ħ
241	CH3	CH ₃	a a	EtS To S	EtSO ₂	H	H	#	Ħ
242	Œ3	CH3	a	EtS Ets	%esO ₂	Ħ	Н		я
243	CH ₃	CH3	CI	EtS	rew ₂			 .	

^{* = 4-}butylsulfinyl

30

35

40

45

50

55

60

65

As previously mentioned, the herein described compounds produced in the above-described manner Herbicidal Screening Tests are phytotoxic compounds which are useful and valuable in controlling various plant species. Selected compounds of this invention were tested as herbicides in the following manner.

On the day preceding treatment, seeds of eight different weed species are planted in loamy sand soil in Pre-Emergence Herbicide Test individual rows using one species per row across the width of a flat. The seeds used are green foxtail (FT) (Setaria viridis), watergrass (WG) (Echinochloa crusgalli), wild oat (WO) (Avena fatua), annual morningglory (AMG) (Ipomoea lacunosa), velvetleaf (VL) (Abutilon theophrasti), Indian mustard (MD) (Brassica juncea), redroot pigweed (PW) (Amaranthus retroflexus) or curly dock (CD) (Rumex crispus), and yellow nutsedge (YNG) (Cyperus esculentus). Ample seeds are planted to give about 20 to 40 seedlings per row, after emergence, depending upon the size of the plants.

Using an analytical balance, 600 milligrams (mg) of the compound to be tested are weighed out on a piece of glassine weighing paper. The paper and compound are placed in a 60 milliliter (ml) wide-mouth clear bottle and dissolved in 45 ml of acetone or substituted solvent. Eighteen ml of this solution are transferred to a 60 ml wide-mouth clear bottle and diluted with 22 ml of a water and acetone mixture (19:1) containing enough polyoxyethylene sorbitan monolaurate emulsifier to give a final solution of 0.5% (v/v). The solution is then sprayed on a seeded flat on a linear spray table calibrated to deliver 80 gallons per acre (748 U/ha). The application rate is 4 lb/acre (4.48 Kg/ha).

After treatment, the flats are placed in the greenhouse at a temperature of 70 to 80°F and watered by sprinkling. Two weeks after treatment, the degree of injury or control is determined by comparison with untreated check plants of the same age. The injury rating from 0 to 100% is recorded for each species as percent control with 0% representing no injury and 100% representing complete control.

The results of the tests are shown in the following Table II.

0 135 191

TABLE II

Pre-Emergence Herbicidal Activity

Application Rate — 4.48 kg/ha

Cmpd.	FT	WG_	<u>wo_</u>	<u>amg</u>	VL_	MD	<u>B</u>	<u>PW</u>	YNG
1 2	0 90	85 90	10 80	75 10	100 90	80 90	80		75 80
3 4 5 6 7 8 9 13 14 21 23 35 39 40 45 55 71 88 167 183 199 200 201 202 203 204 205 206 207 208 209 211 212 213 214 215 216 217 218 219 219 219 219 219 219 219 219 219 219	100 80 40 100 100 60 100 100 100 100 100 100 100	70 100 100 100 100 100 100 100 100 100 1	50 25 0 0 90 95 6 95 6 0 100 85 0 65 0 100 65 100 100 100 100 100 100 100 100 100 10	15	100 40 45 100 100 100 100 98 0 98	100 100 100 100 100 100 100 100 100 100	100 55 50 100 100 100 50 50 85 85 80 20 100		100 100 100 100 100 100 100 100 100 100

TABLE II (continued)

5	Ompd.	FT	<u>wg</u>	<u>wo</u>	AMG	<u>vr</u>	MD_	<u>8</u>	<u>PW</u>	YNG
	226	100	100	60	15	100	100	100		80
	227	100	100	55	15	100	100	90		95
	228	100	100	60	20	95	100	90		10
10	229	5	10	0	0	40	20	0		0
	230	10	40	10	10	95	40	100		80
	231	100	100	75	80	100	100	100		75
	232	100	100	90	100	100	100	85		-
15	232	100	100	80	100	100	100	100		-
13	234	95	100	50	95	100	100	85		-
	235	100	100	70	100	90	100	100		-
	236	100	100	75	100	100	100	85		-
		100	100	55	40	100	100	90		7
20	237				95	100	100	100		95
20	238	100	100	65		100	100	95		90
	239	100	100	30	15	100	-100			

- * Species did not germinate for some reason. A blank indicates that the weed was not tested.

Post-Emergence Herbicide Test

25

30

35

40

45

55

60

65

This test is conducted in an identical manner to the testing procedure for the pre-emergence herbicide test, except the seeds of the eight different weed species are planted 1012 days before treatment. Also, watering of the treated flats is confined to the soil surface and not to the foliage of the sprouted plants.

The results of the post-emergence herbicide test are reported in Table III.

0 135 191

TABLE III

Post-Emergence Herbicidal Activity Application Rate — 4.48 kg/ha

PW YNG	
5 95 0 100	
5 95 100 100 100 100 100 100 100 100 100 10	
- 50 0000000000000000000000000000000000	95 100 70 80 50 60 100 60 100 60 99 99 99 99 4 7 6 6 6 6 6 7 6 6 7 7 6 6 7 7 6 6 7 7 7 6 6 6 7 7 7 6 6 7 7 6 6 7 7 6 6 7 7 6 8 8 8 8

TABLE III (continued)

5	Спрд. No.	FT_	<u>wc</u>	<u>wo</u>	AMG	<u>VL</u>	MD	8	<u>PW</u>	YNG
	226	100	100	85	100	100	100	100		60
	227	95	85	90	100	100	100	90		45
10	228	85	100	0	10	15	95	40		50
70	229	85	70	65	0	0	0	0		35
	230	20	40	10	15	70	40	35		40
	231	100	95	100	95	100	95	100		40
	232	65	75	75	80	90	85	80		60
15	232	80	80	70	95	80	85	80		50
, ,	234	100	80	25	80	75	80	85		35
	235	100	100	40	95	95	100	95		50
	236	75	70	50	90	90	100	90		50
		100	80	80	60	85	60	0		-
20	237		90	60	35	-	100	60		90
-	238	98 70	65	20	15	95	40	70		45
	239	70	ده	20	13					

25 Pre-Emergence Multi-Weed Herbicide Test

30

50

55

Several compounds were evaluated at an application rate of 2 lb/acre (2.24 kg/ha) for pre-emergence activity against a larger number of weed species:

The process was generally similar to the pre-emergence herbicide test described above except that only 300 milligrams of test compound were weighed out and the application rate was 40 gallons per acre.

Redroot pigweed (PW) and curly dock (CD) were eliminated in this test and the following weed species were added:

35	Grasses:	downybrome	Bromus tectorum	(DB)
		annual ryegrass	Lolium multiflorum	(ARG)
33		rox-orange sorghum	Sorghum bicolor	(SHC)
		hemp sesbania	Sesbania exaltata	(SESB)
40		nightshade	Solanum sp.	(SP)
		cocklebur	Xattiium sp.	(CB)

The results of the test are shown in Table IV. 45

TABLE IV Pre-Emergence Multi-Weed Herbicide Test

Cmpd No.	DB_	FT	ARG	WG_	SHC	<u>wo</u>	BSG.	AMG	<u>8833</u>	<u>VL</u>	<u>SP</u>	MD	YNS	Œ
24 210		100	100	100	100	80	95	70	60	100	40	85	100	10

The compounds of the present invention are useful as herbicides, especially as pre-emergence herbicides, and can be applied in a variety of ways at various concentrations. In practice, the compounds herein defined are formulated into herbicidal compositions, by admixture, in herbicidally effective amounts, with the adjuvants and carriers normally employed for facilitating the dispersion of active ingredients for agricultural applications, recognizing the fact that the formulation and mode of application of a toxicant may affect the activity of the materials in a given application. Thus, these active herbicidal compounds may be formulated as granules of relatively large particle size, as wettable powders, as emulsifiable concentrates, as powdery dusts, as solutions or as any of several other known types of

formulations, depending upon the desired mode of application. Preferred formulations for pre-emergence herbicidal applications are wettable powders, emulsifiable concentrates and granules. These formulations may contain at little as about 0.5% to as much as about 95% or more by weight of active ingredient. A herbicidally effective amount depends upon the nature of the seeds or plants to be controlled and the rate of application varies from about 0.05 to approximately 25 pounds per acre, preferably from about 0.1 to about 10 pounds per acre.

about 10 pounds per acre.

Wettable powders are in the form of finely divided particles which disperse readily in water or other dispersants. The wettable powder is ultimately applied to the soil either as a dry dust or as a dispersion in water or other liquid. Typical carriers for wettable powders include fuller's earth, kaolin clays, silicas and other readily wet organic or inorganic diluents. Wettable powders normally are prepared to contain about 5% to about 95% of the active ingredient and usually also contain a small amount of wetting, dispersing, or emulsifying agent to facilitate wetting and dispersion.

Emulsifiable concentrates are homogeneous liquid compositions which are dispersible in water or other dispersant, and may consist entirely of the active compound with a liquid or solid emulsifying agent, or may also contain a liquid carrier, such as xylene, heavy aromatic naphthal, isophorone and other non-volatile organic solvents. For herbicidal application, these concentrates are dispersed in water or other liquid carrier and normally applied as a spray to the area to be treated. The percentage by weight of the essential active ingredient may vary according to the manner in which the composition is to be applied, but in general comprises about 0.5% to 95% of active ingredient by weight of the herbicidal composition.

Granular formulations wherein the toxicant is carried on relatively coarse particles, are usually applied without dilution to the area in which suppression of vegetation is desired. Typical carriers for granular formulations include sand, fuller's earth, bentonite clays, vermiculite, perlite and other organic or inorganic materials which absorb or which may be coated with the toxicant. Granular formulations normally are prepared to contain about 5% to about 25% of active ingredients which may include surface-active agents such heavy aromatic naphthas, kerosene or other petroleum fractions, or vegetable oils; and/or stickers such as destrins, glue or synthetic resins.

Typical wetting, dispersing or emulsifying agents used in agricultural formulations include, for example, the alkyl and alkylaryl sulfonates and sulfates and their sodium salts; polyhydric alcohols; and other types of surface-active agents, many of which are available in commerce. The surface-active agent, when used, normally comprises from 0.1% to 15% by weight of the herbicidal composition.

Dusts, which are free-flowing admixtures of the active ingredient with finely divided solids such as talc, clays, flours and other organic and inorganic solids which act as dispersants and carriers for the toxicant, are useful formulations for soil-incorporating application.

Pastes, which are homogeneous suspensions of a finely divided solid toxicant in a liquid carrier such as water or oil, are employed for specific purposes. These formulations normally contain about 5% to about 95% of active ingredient by weight, and may also contain small amounts of a wetting, dispersing or emulsifying agent to facilitate dispersion. For application, the pastes are normally diluted and applied as a spray to the area to be affected.

Other useful formulations for herbicidal applications include simple solutions of the active ingredient in a dispersant in which it is completely soluble at the desired concentration, such as acetone, alkylated in a dispersant in which it is completely soluble at the desired concentration, such as acetone, alkylated in a dispersant in which it is completely soluble at the desired concentration, such as acetone, alkylated in a dispersant in the active naphthalenes, xylene and other organic solvents. Pressurized sprays, typically aerosols, wherein the active ingredient is dispersed in finely-divided form as a result of vaporization of a low boiling dispersant solvent carrier, such as the Freons, may also be used.

The phytotoxic compositions of this invention are applied to the plants in the conventional manner. Thus, the dust and liquid compositions can be applied to the plant by the use of power-dusters, boom and hand sprayers and spray dusters. The compositions can also be applied from airplanes as a dust or a spray because they are effective in very low dosages. In order to modify or control growth of germinating seeds or emerging seedlings, as a typical example, the dust and liquid compositions are applied to the soil according to conventional methods and are distributed in the soil to a depth of at least \(\frac{1}{2} \) inch below the soil surface. It is not necessary that the phytotoxic compositions be admixed with the soil particles since these compositions can also be applied merely by spraying or sprinkling the surface of the soil. The phytotoxic compositions of this invention can also be applied by addition to irrigation water supplied to the field to be treated. This method of application permits the penetration of the compositions into the soil as the water is absorbed therein. Dust compositions, granular compositions or liquid formulations applied to the surface of the soil can be distributed below the surface of the soil by conventional means such as discing, dragging or mixing operations.

or mixing operations.

The phytotoxic compositions of this invention can also contain other additaments, for example, fertilizers and other herbicides, pesticides and the like, used as adjuvant or in combination with any of the above-described adjuvants. Other phytotoxic compounds useful in combination with the above-described compounds include, for example, anilides such as 2-benzothiazole-2-yloxy-N-methyl acetanilide, 2-chloro-cy,6'-diethyl-N-(butoxymethyl)acetanilide; 2,4-2',6'-dimethyl-N-(n-propylethyl)acetanilide, 2-chloro-2',6'-diethyl-N-(butoxymethyl)acetanilide; 2,4-dichlorophenoxyacetic acids, 2,4,5-trichlorophenoxyacetic acid, 2-methyl-4-chlorophenoxyacetic acid and dichlorophenoxyacetic acids, 2,4,5-trichlorophenoxyacetic acid, 2-methyl-4-chlorophenoxyacetic acid and the salts, esters and amides thereof; triazine derivatives, such as 2,4-bis(3-methoxypropylamino-6-methyl-thio-s-triazine, 2-chloro-4-ethylamino-6-isopropylamino-s-triazine, and 2-ethylamino-4-isopropyl-amino-6-methyl-mercapto-s-triazine; urea derivatives, such as 3-(3,5-dichlorophenyl)-1,1-dimethylurea and 3-(p-methyl-mercapto-s-triazine; urea derivatives, such as 3-(3,5-dichlorophenyl)-1,1-dimethylurea

chlorophenyl]-1,1-dimethylurea; and acetamides such as N,N-diallyl-q-chloroacetamide, and the like; benzoic acids such as 3-amino-2,5-dichlorobenzoic acid; thiocarbamates such as S-(1,1-dimethylbenzyl)piperidene-1-carbothiaote, 3-(4-chlorophenyl)-methyl diethylcarbothioate, ethyl-1-hexahydro-1,4-azepine-1-carbothioate, S-ethyl-nexahydro-1H-azepine-1-carbothioate, S-propyl N,N-dipropylthiocarbamate, Sethyl N,N-dipropylthiocarbamate, S-ethyl cyclohexylethylthiocarbamate and the like; anilines such as 4-(methylsulfonyl)-2,6-dinitro-N,N-substituted aniline, 4-trifluoromethyl-2,6-dinitro-N,N-di-n-propyl aniline, 4-trifluoromethyl-2,6-dinitro-N-ethyl-N-butyl aniline, 2-(4-(2,4-dichlorophenoxy)phenoxy)propanoic acid, 2- $[1-(ethoxyimino)butyl]-5-[2-ethylthio)propyl]-3-hydroxy-2-cyclohexene-1-one, \\ (\pm)-butyl-2[4-[(5-trifluoro-thoxyimino)butyl]-5-[2-ethylthio)propyl]-3-hydroxy-2-cyclohexene-1-one, \\ (\pm)-butyl-2[4-[(5-trifluoro-thoxyimino)butyl]-5-[2-ethylthio)propyl]-3-hydroxy-2-cyclohexene-1-one, \\ (\pm)-butyl-2[4-[(5-trifluoro-thoxyimino)butyl]-5-[2-ethylthio)propyl]-3-hydroxy-2-cyclohexene-1-one, \\ (\pm)-butyl-2[4-[(5-trifluoro-thoxyimino)butyl]-5-[2-ethylthio)propyl]-3-hydroxy-2-cyclohexene-1-one, \\ (\pm)-butyl-2[4-[(5-trifluoro-thoxyimino)butyl]-3-hydroxy-2-cyclohexene-1-one, \\ (\pm)-butyl-2[4-[(5-trifluoro-thoxyimino)butyl]-3-hydroxy-2-cyclohexene-1-one, \\ (\pm)-butyl-2[4-[(5-trifluoro-thoxyimino)butyl]-3-hydroxy-2-cyclohexene-1-one, \\ (\pm)-butyl-2[4-[(5-trifluoro-thoxyimino)butyl]-3-hydroxy-2-cyclohexene-1-one, \\ (\pm)-butyl-2[4-[(5-trifluoro-thoxyimino)butyl-2-(5-trifluoro-thoxyimino)butyl-2-(5-trifluoro-thoxyimino)butyl-3-hydroxy-2-cyclohexene-1-one, \\ (\pm)-butyl-2-(5-trifluoro-thoxyimino)butyl-3-hydroxy-2-cyclohexene-1-one, \\ (\pm)-butyl-2-(5-trifluoro-thoxyimino)butyl-3-hydroxy-2-cyclohexene-1-one, \\ (\pm)-butyl-2-(5-trifluoro-thoxyimino)butyl-3-hydroxy-2-cyclohexene-1-one, \\ (\pm)-butyl-2-(5-trifluoro-thoxyimino)butyl-3-hydroxy-2-cyclohexene-1-one, \\ (\pm)-butyl-2-(5-trifluoro-thoxyimino)butyl-3-hydroxy-2-cyclohexene-1-one, \\ (\pm)-butyl-2-(5-trifluoro-thoxyimino)butyl-3-hydroxy-3-(5-trifluoro-thoxyimino)butyl-3-hydroxy-3-(5-trifluoro-thoxyimino)butyl-3-hydroxy-3-(5-trifluoro-thoxyimino)butyl-3-hydroxy-3-(5-trifluoro-thoxyimino)butyl-3-hydroxy-3-(5-trifluoro-thoxyimino)butyl-3-hydroxy-3-(5-trifluoro-thoxyimino)butyl-3-hydroxy-3-(5-trifluoro-thoxyimino)butyl-3-hydroxy-3-(5-trifluoro-thoxyimino)butyl-3-hydroxy-3-(5-trifluoro-thoxyimino)butyl-3-hydroxy-3-(5-trifluoro-thoxyimino)butyl-3-hydroxy-3-(5-trifluoro-thoxyimino)butyl-3-hydroxy-3-(5-trifluoro-thoxyimino)butyl-3-hydroxy-3-(5-trifluoro-thoxyimino)butyl-3-hydroxy-3-(5-trifluoro-thoxyimino)butyl-3-hydroxy-3-(5-trifluoro-thoxyimino)butyl-3-hydroxy-3-(5-trifluoro-thoxyimino)butyl-3-hydroxy$ methyl)-2-pyridinyl)oxy]phenoxy]propanate, sodium 5-[2-chloro-4-(trifluoromethyl)phenoxy]-2-nitrobenzoate, 3-isopropyl-1H-2,1,3-benzothiadiazine-4(3H)-one-2,2-dioxide, and 4-amino-6-tert-butyl-3(methylthio)-as-triazin-5(4H)-one or 4-amino-6-(1,1-dimethylethyl)-3-(methylthio)-1,2,4-triazin-5(4H)-one and S-(O,O-diisopropyl)-benzene sulfonamide. Fertilizers useful in combination with the active ingredients include, for example, ammonium nitrate, urea and superphosphate. Other useful additaments include materials in which plant organisms take root and grow such as compost, manure, humus, sand, and the 15 like.

Claims for the Contracting States: BE CH DE FR GB IT LI NL SE

1. A compound having the structural formula

Ι

wherein

R is C₁—C₆ alkyl; R1 is hydrogen, C1-C5 alkyl, or

35

40

45

50

55

60

20

25

30

wherein R^a is C_1 — C_4 alkyl or R and R^1 together are alkylene having 3 to 6 carbon atoms;

 R^2 is chlorine, bromine, iodine, or $C_1 - C_4$ alkoxy;

R3 and R4 independently are

- (1) hydrogen;
- (2) halogen;
- (3) C₁—C₄ alkyl; (4) C₁—C₄ aliphatic alkoxy;
- (5) nitro;
- (6) C1-C4 haloalkyl; and
 - (7) R^bSO_n wherein R^b is C_1 — C_4 alkyl; and

n is the integer 0, 1 or 2;

- R⁵ is hydrogen or C₁—C₅ alkyl; and
- R^6 is hydrogen or C_1 — C_6 alkyl; and R^7 is hydrogen or C_1 — C_6 alkyl; and R^8 is hydrogen or C_1 — C_6 alkyl;

and their saits.

- 2. The compounds of Claim 1 wherein:
- R is C1-C4 alkyl;
- R^1 is hydrogen or C_1 — C_4 alkyl;

R² is chlorine, bromine, iodine, or methoxy;

R³ and R⁴ independently are hydrogen, chlorine, bromine, methyl, methoxy, nitro, CF₃, or R⁵SO_n wherein R^b is C_1 — C_4 alkyl; and n is the integer 2;

R⁵ is hydrogen or C₁—C₄ alkyl;

- R⁶ is hydrogen or C₁—C₄ alkyl;
- R7 is hydrogen or C1—C4 alkyl; and
 - R^a is hydrogen or C₁—C₄ alkyl;

and their salts.

- 3. The compounds of Claim 1 wherein:
- R is methyl; 65

R1 is hydrogen or methyl;

R² is chlorine, bromine, iodine, or methoxy;

R³ and R⁴ independently are hydrogen, chlorine, bromine, methyl, methoxy, nitro, CF₃, or R^bSO_n wherein Rº is C1-C4 alkyl; and n is the integer 2;

R5 is hydrogen or methyl;

R⁶ is hydrogen or methyl;

R7 is hydrogen or methyl; and

R⁸ is hydrogen or methyl;

and their salts.

4. The compound of Claim 2 wherein R is methyl, R1 is methyl, R2 is chlorine, R3 is hydrogen, R4 is 4chlorine, R⁵ is hydrogen, R⁶ is hydrogen, R⁷ is hydrogen and R⁸ is hydrogen, and its salts.

5. The triethanolammonium salt of the compound of Claim 4.

6. The compound of Claim 2 wherein R is methyl, R1 is methyl, R2 is chlorine, R3 is hydrogen, R4 is 2-CH₃SO₂—, R⁵ is hydrogen, R⁶ is hydrogen, R⁷ is hydrogen and R⁸ is hydrogen and its saits.

7. The method of controlling undesirable vegetation comprising applying to the area where control is desired, an herbicidally effective amount of a compound having the formula

Ι

25

5

10

15

20

wherein R is C1-C6 alkyl;

R1 is hydrogen, C1—C6 alkyl, or

30

35

40

45

50

55

wherein R^* is C_1 — C_4 alkyl or R and R^4 together are alkylene having 3 to 6 carbon atoms;

R² is chlorine, bromine, iodine, or C₁—C₄ alkoxy;

R³ and R⁴ independently are

- (1) hydrogen;
- (2) halogen;
- (3) C₁—C₄ alkyl; (4) C₁—C₄ aliphatic alkoxy;
- (5) nitro;
- (6) C1-C4 haloalkyl; and
- (7) R^bSO_n— wherein R^b is C₁—C₄ alkyl; and

n is the integer 0, 1 or 2;

R5 is hydrogen or C1-C6 alkyl; and

R6 is hydrogen or C1-C5 alkyl; and

R7 is hydrogen or C1-C6 alkyl; and

R⁶ is hydrogen or C₁—C₆ alkyl;

and their salts.

8. The method of Claim 7 wherein:

R is C1-C4 alkyl;

R' is hydrogen or C₁—C₄ alky!;

R2 is chlorine, bromine, iodine, or methoxy;

 R^3 and R^4 independently are hydrogen, chlorine, bromine, methyl, methoxy, nitro, CF_3 , or R^0SO_3 wherein Rb is C1-C4 alkyl; and n is the integer 2;

R⁵ is hydrogen or C₁—C₄ alkyl; R⁶ is hydrogen or C₁—C₄ alkyl;

R7 is hydrogen or C1---C4 alkyl; and

R8 is hydrogen or C1-C4 alkyl;

and their salts. 60

9. The method of Claim 8 wherein:

R is methyl;

R1 is hydrogen or methyl;

R² is chlorine, bromine, iodine, or methoxy;

 R^3 and R^4 independently are hydrogen, chlorine, bromine, methyl, methoxy, nitro, CF_3 , or R^0SO_3 — 65

wherein R^b is C_1 — C_4 alkyl; and n is the integer 2;

R⁵ is hydrogen or methyl;

R⁶ is hydrogen or methyl;

R7 is hydrogen or methyl; and

R⁸ is hydrogen or methyl;

10. The compound of Claim 9 wherein R is methyl, R1 is methyl, R2 is chlorine, R3 is hydrogen, R4 is 4and their salts. chlorine, R⁵ is hydrogen, R⁶ is hydrogen, R⁷ is hydrogen and R⁸ is hydrogen, and its salts.

11. The method of Claim 10 wherein the triethanolammonium salt is used.

12. The method of Claim 9 wherein R is methyl, R1 is methyl, R2 is chlorine, R3 is hydrogen, R4 is 2- CH_3SO_2 —, R^5 is hydrogen, R^6 is hydrogen, R^7 is hydrogen and R^8 is hydrogen and its salts.

13. A herbicidal composition comprising as an effective ingredient at least one compound according to one of the claims 1 to 6 together with usual carriers and/or diluents.

Claims for the Contracting State: AT 15

1. A process for preparing a compound having the structural formula I

_R5

Ι

25 wherein

20

30

35

40

45

50

55

60

R is C1-C6 alkyl;

R1 is hydrogen, C1—C6 alkyl, or

wherein R^a is C_1 — C_4 alkyl or R and R^1 together are alkylene having 3 to 6 carbon atoms;

 R^2 is chlorine, bromine, iodine, or $C_1 - C_4$ alkoxy;

R3 and R4 independently are

(1) hydrogen;

(2) halogen;

(3) C₁—C₄ alkyl; (4) C₁—C₄ aliphatic alkoxy;

(5) nitro;

(6) C₁—C₄ haloalkyi; and

(7) R^bSO_n — wherein R^b is C_1 — C_4 alkyl; and

n is the integer 0, 1 or 2;

 R^5 is hydrogen or C_1 — C_6 alkyl; and R^6 is hydrogen or C_1 — C_6 alkyl; and R^7 is hydrogen or C_1 — C_6 alkyl; and

and their salts, comprising reacting a dione of the general formula II with a substituted benzoyi cyanide of the general formula

ΙI 65

wherein in the general formulas II and III R, R1, R2, R3, R4, R5, R6, R7, R8 have the meaning as given for the compound of formula I.

2. The process of Claim 1 wherein the reaction is carried out in the presence of zinc chloride and triethylamine.

3. The process of Claim 1 wherein:

R is C_1 — C_4 alkyl;

R1 is hydrogen or C1-C4 alkyl;

R² is chlorine, bromine, iodine, or methoxy;

R³ and R⁴ independently are hydrogen, chlorine, bromine, methyl, methoxy, nitro, CF₃, or R^bSO_n wherein R^n is C_1 — C_4 alkyl; and n is the integer 2; 10

 R^5 is hydrogen or C_1 — C_4 alkyl; R^6 is hydrogen or C_1 — C_4 alkyl;

R7 is hydrogen or methyl; and

R8 is hydrogen or methyl;

and their salts. 15

5

20

25

30

35

40

45

55

60

4. The process of Claim 1 wherein:

R is methyl;

R1 is hydrogen or methyl;

R² is chlorine, bromine, iodine, or methoxy;

 R^3 and R^4 independently are hydrogen, chlorine, bromine, methyl, methoxy, nitro, CF_3 , or R^bSO_n wherein R^b is $C_1 - C_4$ alkyl; and n is the integer 2;

R⁵ is hydrogen or methyl;

R⁶ is hydrogen or methyl;

R7 is hydrogen or methyl; and

R8 is hydrogen or methyl;

and their salts.

5. The process of Claim 2 wherein R is methyl, R1 is methyl, R2 is chlorine, R3 is hydrogen, R4 is 4chlorine, R⁵ is hydrogen, R⁶ is hydrogen, R⁷ is hydrogen and R⁸ is hydrogen, and their salts.

6. The process of Claim 5 wherein the triethanolammonium salt is used.

7. The process of Claim 2 wherein R is methyl, R1 is methyl, R2 is chlorine, R3 is hydrogen, R4 is 4-CH₃SO₂—, R⁵ is hydrogen, R6 is hydrogen, R7 is hydrogen and R8 is hydrogen and its salts.

8. The method of controlling undesirable vegetation comprising applying to the area where control is desired, an herbicidally effective amount of a compound having the formula

Ι

wherein

R is C₁—C₆ aikyl;

R1 is hydrogen, C1-C6 alkyl, or

wherein R^a is C_1 — C_4 alkyl or R and R^1 together are alkylene having 3 to 6 carbon atoms; 50

 R^2 is chlorine, bromine, iodine, or C_1 — C_4 alkoxy;

R3 and R4 independently are

- (1) hydrogen;
- (2) halogen;
- (3) C₁—C₄ alkyl;
- (4) C₁—C₄ aliphatic alkoxy;
- (5) nitro;
- (6) C1-C4 haloalkyl; and

(7) $R^{o}SO_{n}$ — wherein R^{o} is C_{1} — C_{4} alkyl; and

n is the integer 0, 1 or 2;

 R^{5} is hydrogen or C_{1} — C_{6} alkyl; and R^{6} is hydrogen or C_{1} — C_{6} alkyl; and R^{7} is hydrogen or C_{1} — C_{6} alkyl; and R^{8} is hydrogen or C_{1} — C_{6} alkyl;

and their salts. 65

9. The method of Claim 8 wherein: R is C₁—C₄ alkyl; R1 is hydrogen or C1-C4 alkyl; R² is chlorine, bromine, iodine, or methoxy; R^{3} and R^{4} independently are hydrogen, chlorine, bromine, methyl, methoxy, nitro, CF_{3} , or $R^{b}SO_{n}$ wherein R^{p} is C_{1} — C_{4} alkyl; and n is the integer 2; R⁶ is hydrogen or C₁—C₄ alkyl; R⁶ is hydrogen or C₁—C₄ alkyl; R^7 is hydrogen or C_1 — C_4 alkyl; and R⁸ is hydrogen or C₁—C₄ alkyl; 10 and their salts. 10. The method of Claim 9 wherein: R is methyl; R1 is hydrogen or methyl; R² is chlorine, bromine, iodine, or methoxy; R³ and R⁴ independently are hydrogen, chlorine, bromine, methyl, methoxy, nitro, CF₃, or R^bSO_n— 15 wherein Rb is C1-C4 alkyl; and n is the integer 2; R⁵ is hydrogen or methyl; R⁶ is hydrogen or methyl; R7 is hydrogen or methyl; and R8 is hydrogen or methyl; and their salts. 11. The method of Claim 10 wherein R is methyl, R1 is methyl, R2 is chlorine, R3 is hydrogen, R4 is 4chlorine, R⁵ is hydrogen, R⁶ is hydrogen, R⁷ is hydrogen and R⁸ is hydrogen, and its salts. 12. The method of Claim 11 wherein the triethanolammonium salt is used. 13. The method of Claim 10 wherein R is methyl, R1 is methyl, R2 is chlorine, R3 is hydrogen, R4 is 4-25 CH_3SO_2 —, R^5 is hydrogen, R^6 is hydrogen, R^7 is hydrogen and R^8 is hydrogen and its salts. Patentansprüche für die Vertragsstaaten: BE CH DE FR GB IT LI NL SE 30 1. Verbindung der Strukturformel 35 Ι R5 R6 40 R C1-C6-Alkyl bedeutet; R1 Wasserstoff, C1-C6-Alkyl oder 45 bedeutet. worin Ra für C1-C4-Alkyl steht oder worin R und R1 zusammen Alkylen mit 3 bis 6 Kohlenstoffatomen 50 bedeuten; R² Chlor, Brom, Jod oder C₁—C₄-Aikoxy bedeutet: R3 und R4 unabhängig (1) Wasserstoff; (2) Halogen; 55 (3) C₁—C₄-Alkyl; (4) C₁—C₄-aliphatisches Alkoxy; (5) Nitro; (6) C₁—C₄-Haloalkyl; und (7) $R^{b}SO_{n}$, worin R^{b} für C_{1} — C_{4} -Alkyl und n für eine ganze Zahl von 0, 1 oder 2 stehen, bedeuten; 60 R5 Wasserstoff oder C,--C6-Alkyl bedeutet; und R^6 Wasserstoff oder C_1 — C_6 -Alkyl bedeutet; und R^7 Wasserstoff oder C_1 — C_6 -Alkyl bedeutet; und

R^a Wasserstoff oder C1-C6-Alkyl bedeutet;

und ihre Salze.

- 2. Verbindung nach Anspruch 1, worin
- R C1-C4-Alkyl bedeutet;
- R1 Wasserstoff oder C1---C4-Alkyl bedeutet;
- R² Chlor, Brom, Jod oder Methoxy bedeutet;
- R³ und R⁴ unabhängig Wasserstoff, Chlor, Brom, Methyl, Methoxy, Nitro, CF₃ oder R°SOn— bedeuten, worin R^b für C₁—C₄-Alkyl und n für eine ganze Zahl von 2 stehen;
 - R⁵ Wasserstoff oder C₁—C₄-Alkyl bedeutet;
 - R6 Wasserstoff oder C1-C4-Alkyl bedeutet;
 - R7 Wasserstoff oder C1-C4-Alkyl bedeutet; und
- R8 Wasserstoff oder C1-C4-Alkyl bedeutet; 10
 - und ihre Salze.
 - 3. Verbindung nach Anspruch 1, worin
 - R Methyl bedeutet;
 - R1 Wasserstoff oder Methyl bedeutet;
 - R² Chlor, Brom, Jod oder Methoxy bedeutet;
 - R³ und R⁴ unabhängig Wasserstoff, Chlor, Brom, Methyl, Methoxy, Nitro, CF₃ oder R^bSO_n— bedeuten, worin Rb C1-C4-Alkyl bedeutet und n für eine ganze Zahl von 2 bedeutet;
 - R5 Wasserstoff oder Methyl bedeutet;
 - R⁶ Wasserstoff oder Methyl bedeutet;
 - R7 Wasserstoff oder Methyl bedeutet; und
 - R⁸ Wasserstoff oder Methyl bedeutet;
 - und ihre Salze.

20

25

30

35

40

45

- 4. Verbindung nach Anspruch 2, worin R Methyl, R¹ Methyl, R² Chlor, R³ Wasserstoff, R⁴ 4-Chlor, R⁵ Wasserstoff, R⁶ Wasserstoff, R⁷ Wasserstoff bedeuten, und ihre Salze.
 - 5. Das Triethanolammoniumsalz der Verbindung nach Anspruch 4.
- 6. Verbindung nach Anspruch 2, worin R Methyl, R¹ Methyl, R² Chlor, R³ Wasserstoff, R⁴ 4-CH₃SO₂—, R⁵ Wasserstoff, R⁶ Wasserstoff, R⁷ Wasserstoff und R⁸ Wasserstoff bedeuten, und ihre Salze.
- 7. Verfahren zur Kontrolle unerwünschter Vegetation, dadurch gekennzeichnet, daß man auf die Fläche, wo eine Kontrolle erfolgen soll, eine herbizid wirksame Menge einer Verbindung der Formel

I

anwendet, worin

- R C1-C6-Alkyl bedeutet;
- R1 Wasserstoff, C1-C6-Alkyl oder

worin Ra für C1-C4-Alkyl steht oder worin R und R1 zusammen Alkylen mit 3 bis 6 Kohlenstoffatomen bedeuten;

- R² Chlor, Brom, Jod oder C₁—C₄-Alkoxy bedeutet;
- R³ und R⁴ unabhängig
 - (1) Wasserstoff;
 - (2) Halogen;

 - (3) C₁—C₄-Alkyl; (4) C₁—C₄-aliphatisches Alkoxy;
 - (5) Nitro;
 - (6) C₁—C₄-Haloalkyl; und
 - (7) R^bSO_n —, worin R^b für C_1 — C_4 -Alkyl und n für eine ganze Zahl von 0, 1 oder 2 stehen, bedeuten;
- R5 Wasserstoff oder C1-C6-Alkyl bedeutet; und 60
 - R^6 Wasserstoff oder C_1 — C_6 -Alkyl bedeutet; und
 - R7 Wasserstoff oder C1-C6-Alkyl bedeutet; und
 - R⁸ Wasserstoff oder C₁—C₆-Alkyl bedeutet;
- und ihr Salze.
- 8. Verfahren nach Anspruch 7, worin

R C1-C4-Alkyl bedeutet;

R1 Wasserstoff oder C1-C4-Alkyl bedeutet;

R² Chlor, Brom, Jod oder Methoxy bedeutet;

R³ und R⁴ unabhängig Wasserstoff, Chlor, Brom, Methyl, Methoxy, Nitro, CF₃ oder R⁵SOn— bedeuten, worin R^b C₁---C₄-Alkyl und n eine ganze Zahl von 2 bedeuten;

R⁵ Wasserstoff oder C₁—C₄-Alkyl bedeutet;

R6 Wasserstoff oder C1-C4-Alkyl bedeutet;

R7 Wasserstoff oder C1-C4-Alkyl bedeutet; und

Rª Wasserstoff oder C1-C4-Alkyl bedeutet;

10 und ihre Salze.

9. Verfahren nach Anspruch 8, worin

R Methyl bedeutet;

R1 Wasserstoff oder Methyl bedeutet;

R² Chlor, Brom, Jod oder Methoxy bedeutet;

R³ und R⁴ unabhāngig Wasserstoff, Chlor, Brom, Methyl, Methoxy, Nitro, CF₃ oder R⁵SOn— bedeuten, worin R^b C₁—C₄-Alkyl und n für eine ganze Zahl von 2 bedeuten;

R⁵ Wasserstoff oder Methyl bedeutet;

R⁶ Wasserstoff oder Methyl bedeutet;

R7 Wasserstoff oder Methyl bedeutet; und

R⁸ Wasserstoff oder Methyl bedeutet;

und ihre Saize.

20

35

40

55

60

65

10. Verfahren nach Anspruch 9, worin R Methyl, R1 Methyl, R2 Chlor, R3 Wasserstoff, R4 4-Chlor, R5 Wasserstoff, R⁸ Wasserstoff, R⁷ Wasserstoff bedeuten, und ihre Salze.

11. Verfahren nach Anspruch 10, bei dem das Triethanolammoniumsalz verwendet wird.

12. Verfahren nach Anspruch 9, worin R Methyl, R¹ Methyl, R² Chlor, R³ Wasserstoff, R⁴ 4-CH₃SO₂---, R⁵ Wasserstoff, R⁶ Wasserstoff, R⁷ Wasserstoff und R⁸ Wasserstoff bedeuten, und ihre Salze.

13. Herbizides Präparat, dadurch gekennzeichnet, daß es als wirksamen Bestandteil mindestens eine Verbindung nach einem der Ansprüche 1 bis 6 zusammen mit üblichen Trägerstoffen und/oder Verdünnungsmittel enthält.

Patentansprüche für den Vertragsstaat: AT

1. Verfahren zur Herstellung einer Verbindung der Strukturformel I

I

worin

R C1-C6-Alkyl bedeutet;

R1 Wasserstoff, C1-C6-Alkyl oder

bedeutet,

worin Ra C1-C4-Alkyl steht oder worin R und R1 zusammen Alkylen mit 3 bis 6 Kohlenstoffatomen

R2 Chlor, Brom, Jod oder C1-C4-Alkoxy bedeutet;

R3 und R4 unabhängig

- (1) Wasserstoff;
- (2) Halogen;
- (3) C₁—C₄-Alkyl; (4) C₁—C₄-aliphatisches Alkoxy;
- (5) Nitro;
 - (6) C₁---C₄-Haloalkyl; und
 - (7) RbSOn-, bedeutet, worin Rb C1-C4-Alkyl und n eine ganze Zahl von 0, 1 oder 2 bedeuten;

 R^5 Wasserstoff oder C_1-C_6 -Alkyl bedeutet; und R^6 Wasserstoff oder C_1-C_6 -Alkyl bedeutet; und

R7 Wasserstoff oder C1-C6-Alkyl bedeutet; und

R8 Wasserstoff oder C1-C6-Alkyl bedeutet; und ihr Salze, dadurch gekennzeichnet, daß man ein Dion der allgemeinen Formel II mit einem substituierten Benzoylcyanid der allgemeinen Formel

5 R R1 O R2 R3

$$R^7$$
 O R2 R3

 R^7 O R4

 R^7 O R4

 R^7 O R4

 R^7 O R5 R6 I

umsetzt, worin in den allgemeinen Formeln II und II, R, R¹, R², R³, R⁴, R⁵, R⁶, R⁷, R⁸ die Bedeutungen besitzen, wie sie für die Verbindung der Formel I angegeben wurden.

2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Reaktion in Anwesenheit von Zinkchlorid und Triethylamin durchgeführt wird.

3. Verfahren nach Anspruch 1, bei dem

R C1-C4-Alkyl bedeutet;

R1 Wasserstoff oder C1-C4-Alkyl bedeutet;

R² Chlor, Brom, Jod oder Methoxy bedeutet;

R³ und R⁴ unabhängig Wasserstoff, Chior, Brom, Methyl, Methoxy, Nitro, CF₃ oder R⁵SO"— bedeuten, worin Rb C1-C4-Alkyl und n eine ganze Zahl von 2 bedeuten;

 R^5 Wasserstoff oder C_1 — C_4 -Alkyl bedeutet; R^6 Wasserstoff oder C_1 — C_4 -Alkyl bedeutet;

R' Wasserstoff oder methyl bedeutet; und

Rª Wasserstoff oder methyl bedeutet;

und ihre Salze.

20

25

30

35

40

4. Verfahren nach Anspruch 1, bei dem

R Methyl bedeutet;

R1 Wasserstoff oder Methyl bedeutet;

R² Chlor, Brom, Jod oder Methoxy bedeutet;

R³ und R⁴ unabhängig Wasserstoff, Chlor, Brom, Methyl, Methoxy, Nitro, CF₃ oder R⁵SOn— bedeuten, worin R^b C₁—C₄-Alkyl und n eine ganze Zahl von 2 bedeuten;

R⁵ Wasserstoff oder Methyl bedeutet;

R6 Wasserstoff oder Methyl bedeutet;

R7 Wasserstoff oder Methyl bedeutet; und

R8 Wasserstoff oder Methyl bedeutet;

und ihre Salze.

5. Verfahren nach Anspruch 2, worin R Methyl, R¹ Methyl, R² Chlor, R³ Wasserstoff, R⁴ 4-Chlor, R⁵ Wasserstoff, R⁶ Wasserstoff, R⁷ Wasserstoff bedeuten, und ihre Salze.

6. Verfahren nach Anspruch 5, bei dem das Triethanolammoniumsalz verwendet wird.

7. Verfahren nach Anspruch 2, bei dem R Methyl, R¹ Methyl, R² Chlor, R³ Wasserstoff, R⁴ 4-CH₃SO₂—, R⁵ Wasserstoff, R⁶ Wasserstoff, R⁷ Wasserstoff und R⁸ Wasserstoff bedeuten, und ihre Saize.

8. Verfahren zur Kontrolle unerwünschter Vegetation, dadurch gekennzeichnet, daß man auf die Fläche, wo eine Kontrolle erfolgen soll, eine herbizid wirksame Menge einer Verbindung der Formel 50

Ξ

anwendet, worin

R C1-C6-Alkyl bedeutet;

R1 Wasserstoff, C1-Cs-Alkyl oder

65

bedeutet,

worin Rª C1-C4-Alkyl bedeutet oder worin R und R¹ zusammen Alkylen mit 3 bis 6 Kohlenstoffatomen bedeuten;

R² Chlor, Brom, Jod oder C₁—C₄-Alkoxy bedeutet;

R3 und R4 unabhängig

- (1) Wasserstoff;
- (2) Halogen;
- (3) C₁—C₄-Alkyl; (4) C₁—C₄-aliphatisches Alkoxy;
- (5) Nitro; 10
 - (6) C1-C4-Haloalkyl; und
 - (7) R^bSO_n bedeuten, worin R^b C_1 — C_4 -Alkyl und n eine ganze Zahl von 0, 1 oder 2 stehen, bedeuten;
 - R⁵ Wasserstoff oder C₁—C₆-Alkyl; und
- R^6 Wasserstoff oder C_1 — C_6 -Alkyl; und 15
 - R7 Wasserstoff oder C1-C5-Alkyl; und
 - Rª Wasserstoff oder C1-C6-Alkyl bedeuten;

und ihre Salze.

- 9. Verfahren nach Anspruch 8, bei dem
- R C,-C,-Alkyl bedeutet; 20
 - R^1 Wasserstoff oder C_1 — C_4 -Alkyl bedeutet;
 - R2 Chlor, Brom, Jod oder Methoxy bedeutet;
 - R³ und R⁴ unabhängig Wasserstoff, Chlor, Brom, Methyl, Methoxy, Nitro, CF₃ oder R⁵SO"— bedeuten, worin Rb C1-C4-Alkyl und n eine ganze Zahl von 2 bedeuten;
 - R⁵ Wasserstoff oder C₁—C₄-Alkyl bedeutet;

 - R^6 Wasserstoff oder C_1 — C_4 -Alkyl bedeutet; R^7 Wasserstoff oder C_1 — C_4 -Alkyl bedeutet; und
 - R8 Wasserstoff oder C1-C4-Alkyl bedeutet;

und ihre Salze.

25

30

- 10. Verfahren nach Anspruch 9, bei dem
- R Methyl bedeutet;
- R1 Wasserstoff oder Methyl bedeutet;
- R² Chlor, Brom, Jod oder Methoxy bedeutet;
- R³ und R⁴ unabhängig Wasserstoff, Chlor, Brom, Methyl, Methoxy, Nitro, CF₃ oder R⁵SOn— bedeuten, worin Rb C1-C4-Alkyl und n für eine ganze Zahl von 2 bedeuten;
 - R5 Wasserstoff oder Methyl bedeutet;
 - R⁸ Wasserstoff oder Methyl bedeutet;
 - R7 Wasserstoff oder Methyl bedeutet; und
 - Rª Wasserstoff oder Methyl bedeutet;
- und ihre Salze.
 - 11. Verfahren nach Anspruch 10, bei dem R Methyl, R1 Methyl, R2 Chlor, R3 Wasserstoff, R4 4-Chlor, R5 Wasserstoff, R⁶ Wasserstoff, R⁷ Wasserstoff und R⁵ Wasserstoff bedeuten, und ihre Salze.
 - 12. Verfahren nach Anspruch 11, bei dem das Triethanolammoniumsalz verwendet wird.
- 13. Verfahren nach Anspruch 10, bei dem R Methyl, R¹ Methyl, R² Chlor, R³ Wasserstoff, R⁴ 4-CH₃SO₂—, R⁵ Wasserstoff, R⁶ Wasserstoff, R⁷ Wasserstoff und R⁸ Wasserstoff bedeuten, und ihre Salze.

Revendications pour les Etats contractants: BE CH DE FR GB IT LI NL SE

1. Un dérivé de formule structurelle:

I

dans laquelle:

R représente un radical alkyle en C1 à C5;

R¹ représente un atome d'hydrogène, un radical alkyle en C₁ à C6 ou

65

60

50

dans laquelle Rª représente un radical alkyle en C₁ à C₄, ou R et R¹ forment ensemble un radical alkylène renfermant de 3 à 6 atomes de carbone;

 R^2 représente un atome de chlore, de brome, d'iode ou un radical alkoxy en C_1 à C_4 ;

R³ et R⁴ représente indépendamment:

- (1) un atome d'hydrogène;
- (2) un atome d'halogène;
- (3) un radical alkyle en C1 à C4;
- (4) un radical alkoxy aliphatique en C1 à C4;
- (5) un groupe nitro;

5

10

20

25

30

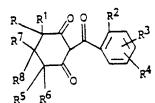
35

45

50

55

- (6) un radical haloalkyle en C1 à C4; et
- (7) R°SO,— dans lequel R° représente un radical alkyle en C, à C, et n est un entier égal à 0, 1 ou 2;
- R^{5} représente un atome d'hydrogène ou un radical alkyle en C_{1} à C_{6} ; et
- R⁶ représente un atome d'hydrogène ou un radical alkyle en C₁ à C₅; et
- R' représente un atome d'hydrogène ou un radical alkyle en C₁ à C₆; et
- R^8 représente un atome d'hydrogène ou un radical alkyle en C_1 à C_6 ; et
- 15 et leurs sels.
 - 2. Les dérivés selon la revendication 1, dans lesquels:
 - R représente un radical alkyle en C₁ à C₄;
 - R¹ représente un atome d'hydrogène ou un radical alkyle en C₁ à C₄;
 - R² représente un atome de chlore, de brome, d'iode ou un groupe méthoxy;
 - R3 et R4 représentent indépendamment un atome d'hydrogène, de chlore, de brome, un radical méthyle, méthoxy, un groupe nitro, CF₃ ou R^bSO_n— dans lequel R^b représente un radical alkyle en C₁ à C₄ et n est égal à 2;
 - R^5 représente un atome d'hydrogène ou un radical alkyle en C_1 à C_4 ;
 - R6 représente un atome d'hydrogène ou un radical alkyle en C1 à C4;
 - R^7 représente un atome d'hydrogène ou un radical alkyle en C_1 à C_4 ;
 - R8 représente un atome d'hydrogène ou un radical alkyle en C1 à C4;
 - et leurs sels. 3. Les dérivés selon la revendication 1, dans lesqueis:
 - R représente un radical méthyle;
 - R¹ représente un atome d'hydrogène ou un radical méthyle;
 - R² représente un atome de chlore, de brome, d'iode ou un groupe méthoxy;
 - R³ et R⁴ représentent indépendamment un atome d'hydrogène, de chlore, de brome, un radical méthyle, méthoxy, un groupe nitro, CF₃ ou R^bSO_n— dans lequel R^b représente un radical alkyle en C₁ à C₄ et n est égal à 2;
 - R5 représente un atome d'hydrogène ou un radical méthyle;
 - R6 représente un atome d'hydrogène ou un radical méthyle;
 - R7 représente un atome d'hydrogène ou un radical méthyle;
 - Rª représente un atome d'hydrogène ou un radical méthyle;
- 40
- 4. Les dérivés selon la revendication 2, dans lesquels R représente le radical méthyle, R¹ représente le radical méthyle, R² représente un atome de chlore, R³ représente un atome d'hydrogène, R⁴ représente un atome de chlore en position 4, R5 représente un atome d'hydrogène, R6 représente un atome d'hydrogène, R⁷ représente un atome d'hydrogène, R⁸ représente un atome hydrogène, et leurs sels.
 - 5. Le sel de triéthanolammonium du dérivé selon la revendication 4.
 - 6. Le dérivé selon la revendication 2, dans lequel R représente le radical méthyle, R1 représente la radical méthyle, R² représente un atome de chlore, R³ représente un atome d'hydrogène, R⁴ représente 4-CH₃SO₂—, R⁵ représente un atome d'hydrogène, R⁵ représente un atome d'hydrogène, R7 représente un atome d'hydrogène, R^a représente un atome d'hydrogène, et ses sels.
 - 7. Le procédé de contrôle d'une végétation indésirable consistant à appliquer à la zone que l'on souhaite contrôler une quantité efficace en tant qu'herbicide d'un dérivé de formule:



Τ

dans laquelle: 60

R représente un radical alkyle en C1 à C6;

 R^1 représente un atome d'hydrogène, un radical alkyle en C_1 à C_6 ou

dans laquelle Rª représente un radical alkyle en C, à C4, ou R et R¹ forment ensemble un radical alkylène renfermant de 3 à 6 atomes de carbone;

 R^2 représente un atome de chlore, de brome, d'iode ou un radical alkoxy en C_1 à C_4 ;

R³ et R⁴ représente indépendamment:

- (1) un atome d'hydrogène;
- (2) un atome d'halogène;
- (3) un radical alkyle en C₁ à C₄;
- (4) un radical alkoxy aliphatique en C1 à C4;
- (5) un groupe nitro;

5

10

- (6) un radical haloalkyle en C1 à C4; et
- (7) R^bSO_n dans lequel R^b représente un radical alkyle en C_1 à C_4 et n est un entier égal à 0, 1 ou 2;
- R^5 représente un atome d'hydrogène ou un radical alkyle en C_1 à C_6 ; et
- R⁶ représente un atome d'hydrogène ou un radical alkyle en C₁ à C₆; et
- R⁷ représente un atome d'hydrogène ou un radical alkyle en C₁ à C₀; et
- R⁸ représente un atome d'hydrogène ou un radical alkyle en C₁ à C₆; et
- et leurs sels.
 - 8. Le procédé selon la revendication 7, dans lequel: R représente un radical alkyle C1 à C4;
 - R¹ représente un atome d'hydrogène ou un radical alkyle en C₁ à C₄;
 - R² représente un atome de chlore, de brome, d'iode ou un groupe méthoxy;
- R³ et R⁴ représentent indépendamment un atome d'hydrogène, de chlore, de brome, un radical méthyle, méthoxy, un groupe nitro, CF₃ ou R^bSO_n— dans lequel R^b représente un radical alkyle en C₁ à C₄ et n est égal à 2;
 - R⁵ représente un atome d'hydrogène ou un radical alkyle en C₁ à C₄;
- R⁸ représente un atome d'hydrogène ou un radical alkyle en C₁ à C₄;
 - R7 représente un atome d'hydrogène ou un radical alkyle en C, à C4;
 - R⁸ représente un atome d'hydrogène ou un radical alkyle en C, à C₄;
 - et leurs sels. 9. Le procédé selon la revendication 8, dans lequel:
- R représente un radical méthyle; 30
 - R1 représente un atome d'hydrogène ou un radical méthyle;
 - R² représente un atome de chlore, de brome, d'iode ou un groupe méthoxy;
- R³ et R⁴ représentent indépendamment un atome d'hydrogène, de chlore, de brome, un radical méthyle, méthoxy, un groupe nitro, CF3 ou R°SO,— dans lequel R° représente un radical alkyle en C1 à C4 et 35 n est égal à 2;
 - R⁵ représente un atome d'hydrogène ou un radical méthyle;
 - R⁶ représente un atome d'hydrogène ou un radical méthyle;
 - R7 représente un atome d'hydrogène ou un radical méthyle;
 - R8 représente un atome d'hydrogène ou un radical méthyle;
- et leurs sels.
- 10. Le procédé selon la revendication 9, dans lequel R représente le radical méthyle, R¹ représente le radical méthyle, R² représente un atome de chlore, R³ représente un atome d'hydrogène, R⁴ représente un atome de chlore en position 4, R⁶ représente un atome d'hydrogène, R⁶ représente un atome d'hydrogène, R⁷ représente un atome d'hydrogène, R⁸ représente un atome d'hydrogène, et ses sels.
 - 11. Le procédé selon la revendication 10, dans lequel utilise le sel de triéthanolammonium.
 - 12. Le procédé selon la revendication 9, dans lequel R représente le radical méthyle, R¹ représente la radical méthyle, R² représente un atome de chlore, R³ représente un atome d'hydrogène, R⁴ représente 4-CH₃SO₂—, R⁵ représente un atome d'hydrogène, R⁵ représente un atome d'hydrogène, R7 représente un atome d'hydrogène, R^a représente un atome d'hydrogène, et ses sels.
 - 13. Une composition herbicide comprenant comme ingrédient efficace au moins un dérivé selon l'une quelconque des revendications 1 à 6 ci-dessus en même temps que des supports et/ou diluants classiques.

Revendications pour l'Etat contractant: AT

1. Un procédé de préparation d'un dérivé de formule structurelle l:

I

65

55

dans laquelle:

5

15

20

25

50

55

60

65

R représente un radical alkyle en C_t à C₆;

R¹ représente un atome d'hydrogène, un radical alkyle en C₁ à C₅ ou

dans laquelle Ra représente un radical alkyle en C1 à C4, ou R et R1 forment ensemble un radical alkylène renfermant de 3 à 6 atomes de carbone; 10

 R^2 représente un atome de chlore, de brome, d'iode ou un radical alkoxy en C_1 à C_4 ;

R³ et R⁴ représente indépendamment:

(1) un atome d'hydrogène;

(2) un atome d'halogène;

(3) un radical alkyle en C1 à C4;

(4) un radical alkoxy aliphatique en C1 à C4;

(5) un groupe nitro;

(6) un radical haloalkyle en C, à C4; et

(7) R^bSO_n — dans lequel R^b représente un radical alkyle en C_1 à C_4 et n est un entier égal à 0, 1 ou 2;

 R^5 représente un atome d'hydrogène ou un radical alkyle en C_1 à C_6 ; et

 R^6 représente un atome d'hydrogène ou un radical alkyle en C_1 à C_6 ; et

R' représente un atome d'hydrogène ou un radical alkyle en C₁ à C₆; et

 R^a représente un atome d'hydrogène ou un radical alkyle en C_1 à C_6 ; et et leurs sels, consistant à faire réagir une dione de formule générale II avec un cyanure de benzoyle substitué de formule générale:

dans laquelle, dans les formules générales II et III, R1, R2, R3, R4, R5, R6, R7 et R8 ont les significations indiquées pour le dérivé de formule l.

2. Le procédé selon la revendication 1, dans lequel on met la réaction en oeuvre en présence de chlorure de zinc et de triéthylamine.

3. Le procédé selon la revendication 1, dans lequel:

R représente un radical alkyle C1 en à C4;

R¹ représente un atome d'hydrogène ou un radical alkyle en C₁ à C₄;

R² représente un atome de chlore, de brome, d'iode ou un groupe méthoxy;

R3 et R4 représentent indépendamment un atome d'hydrogène, de chlore, de brome, un radical méthyle, méthoxy, un groupe nitro, CF₃ ou R^bSO_n— dans lequel R^b représente un radical alkyle en C, à C₄ et n est égal à 2;

R⁵ représente un atome d'hydrogène ou un radical alkyle en C, à C₄;

R⁶ représente un atome d'hydrogène ou un radical alkyle en C₁ à C₄;

R7 représente un atome d'hydrogène ou un radical methyl;

Re représente un atome d'hydrogène ou un radical methyl; et leurs sels.

4. Le procédé selon la revendication 1, dans lequel:

R représente un radical méthyle;

R¹ représente un atome d'hydrogène ou un radical méthyle;

R² représente un atome de chlore, de brome, d'iode ou un groupe méthoxy;

R³ et R⁴ représentent indépendamment un atome d'hydrogène, de chlore, de brome, un radical méthyle, méthoxy, un groupe nitro, CF₃ ou R^bSO_n— dans lequel R^b représente un radical alkyle en C₁ à C₄ et n est égal à 2;

R5 représente un atome d'hydrogène ou un radical méthyle;

R⁶ représente un atome d'hydrogène ou un radical méthyle;

R7 représente un atome d'hydrogène ou un radical méthyle;

Rª représente un atome d'hydrogène ou un radical méthyle;

et leurs seis.

5. Le procédé selon la revendication 2, dans lequel R représente le radical méthyle, R¹ représente le radical méthyle, R² représente un atome de chlore, R³ représente un atome d'hydrogène, R⁴ représente un atome de chlore en position 4, R5 représente un atome d'hydrogène, R6 représente un atome d'hydrogène, R⁷ représente un atome d'hydrogène, R⁸ représente un atome hydrogène, et leurs sels.

6. Le procédé selon la revendication 5, dans lequel on utilise le sel de triéthanolammonium.

7. Le procédé selon la revendication 2, dans lequel R représente le radical méthyle, R¹ représente la radical méthyle, R² représente un atome de chlore, R³ représente un atome d'hydrogène, R⁴ représente 4-CH₃SO₂—, R⁵ représente un atome d'hydrogène, R⁶ représente un atome d'hydrogène, R⁷ représente un atome d'hydrogène, R8 représente un atome d'hydrogène, et ses sels.

8. Le procédé de contrôle d'une végétation indésirable consistant à appliquer à la zone que l'on désire

Ι

contrôler une quantité efficace en tant qu'herbicide d'un dérivé de formule:

25

30

40

45

50

20

dans laquelle:

R représente un radical alkyle en C, à C,;

R¹ représente un atome d'hydrogène, un radical alkyle en C₁ à C₅ ou

dans laquelle R° représente un radical alkyle en C1 à C4, ou R et R¹ forment ensemble un radical alkylène renfermant de 3 à 6 atomes de carbone;

R² représente un atome de chlore, de brome, d'iode ou un radical alkoxy en C1 à C4;

R³ et R⁴ représentent indépendamment:

- un atome d'hydrogène;
- (2) un atome d'halogène;
- (3) un radical alkyle en C1 à C4;
- (4) un radical alkoxy aliphatique en C, à Ca;
- (5) un groupe nitro;
- (6) un radical haloaikyle en C1 à C4; et
- (7) R°SOn— dans lequel R° représente un radical alkyle en C1 à C4 et n est un entier égal à 0, 1 ou 2;
- R⁵ représente un atome d'hydrogène ou un radical alkyle en C₁ à C₆; et
- Re représente un atome d'hydrogène ou un radical alkyle en C1 à C8; et
- R7 représente un atome d'hydrogène ou un radical alkyle en C1 à C6; et
- Re représente un atome d'hydrogène ou un radical alkyle en C, à C6; et
- et leurs sels.
 - 9. Le procédé selon la revendication 8, dans lequel:
 - R représente un radical alkyle en C1 à C4;
 - R¹ représente un atome d'hydrogène ou un radical alkyle en C₁ à C₄;
 - R² représente un atome de chlore, de brome, d'iode ou un groupe méthoxy;
- R3 et R4 représentent indépendamment un atome d'hydrogène, de chlore, de brome, un radical 55 méthyle, méthoxy, un groupe nitro, CF₃ ou R^bSO_n— dans lequel R^b représente un radical alkyle en C₁ à C₄ et n est égal à 2;
 - R⁵ représente un atome d'hydrogène ou un radical alkyle en C₁ à C₄;
 - R⁶ représente un atome d'hydrogène ou un radical alkyle en C₁ à C₄;
 - R7 représente un atome d'hydrogène ou un radical alkyle en C1 à C4;
- R8 représente un atome d'hydrogène ou un radical alkyle en C1 à C4; 60 et leurs sels.
 - 10. Le procédé selon la revendication 9, dans lequel:
 - R représente le radical méthyle;
 - R¹ représente un atome d'hydrogène ou un radical méthyle;
- R² représente un atome de chlore, de brome, d'iode ou un groupe méthoxy; 6**5**



R³ et R⁴ représentent indépendamment un atome d'hydrogène, de chlore, de brome, un radical méthyle, méthoxy, un groupe nitro, CF₃ ou R^bSO_n— dans lequel R^b représente un radical alkyle en C₁ à C₄ et n est égal à 2;

R⁵ représente un atome d'hydrogène ou le radical méthyle;

R⁶ représente un atome d'hydrogène ou le radical méthyle;

R⁷ représente un atome d'hydrogène ou le radical méthyle;

R^a représente un atome d'hydrogène ou le radical méthyle;

20

25

30

35

40

45

50

55

60

65

11. Le procédé selon la revendication 10, dans lequel R représente le radical méthyle, R1 représente le 10 radical méthyle, R² représente un atome de chlore, R³ représente un atome d'hydrogène, R⁴ représente un atome de chlore en position 4, R⁵ représente un atome d'hydrogène, R⁶ représente un atome d'hydrogène, R⁷ représente un atome d'hydrogène, R⁶ représente un atome d'hydrogène, et ses sels.

12. Le procédé selon la revendication 11, dans lequel on utilise le sel de triéthanolammonium.

13. Le procédé selon la revendication 10, dans lequel R représente le radical méthyle, R¹ représente la radical méthyle, R² représente un atome de chlore, R³ représente un atome d'hydrogène, R⁴ représente 4cadical illettiyle, it represente un atome de chiore, it represente un atome d'hydrogène, n' représente un atome d'hydrogène, R⁵ représente un atome d'hydrogène, R⁷ représente un atome d'hydrogène, R⁸ représente un a atome d'hydrogène, R^a représente un atome d'hydrogène, et ses sels.